



alt # 14 #17

Bescheinigung

Die Daimler-Benz Aktiengesellschaft in Stuttgart/Deutschland hat eine Patentanmeldung unter der Bezeichnung

"Brennstoffzellensystem"

am 25. Februar 1998 beim Deutschen Patent- und Markenamt eingereicht.

Die Anmeldung ist auf die DaimlerChrysler AG in Stuttgart/Deutschland umgeschrieben worden.

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

Die Anmeldung hat im Deutschen Patent- und Markenamt vorläufig das Symbol H 01 M 8/04 der Internationalen Patentklassifikation erhalten.

München, den 3. Mai 1999

Deutsches Patent- und Markenamt

Der Präsident

Im Auftrag



Joost

Aktenzeichen: 198 07 876.5

Daimler-Benz-Aktiengesellschaft
Stuttgart

EP/VP - MH
13.02.1998

Zusammenfassung

Brennstoffzellensystem mit mindestens einer Brennstoffzelle, die einen Anodenraum und einen Kathodenraum aufweist, die durch eine protonenleitende Membran voneinander getrennt sind, mit einer Kathodenzuleitung zur Zufuhr von sauerstoffhaltigem Gas zum Kathodenraum, einer Anodenzuleitung zur Zufuhr eines flüssigen Kühlmittel/Brennstoff-Gemisches zum Anodenraum, wobei der Anodenraum in einem einen Gasabscheider und eine Pumpe umfassenden Anodenkreislauf angeordnet ist und eine Kühlung des im Anodenkreislauf zirkulierenden Kühlmittel/Brennstoff-Gemisches durch die Brennstoffzelle erfolgt, die auf einen Betrieb mit Wasserdurchbruch von dem Anodenraum in den Kathodenraum ausgelegt ist. Durch die somit erzielte Verdampfungskühlung in der Brennstoffzelle erfolgt eine Kühlung des Kühlmittel/Brennstoff-Gemisches bei einer sich in der Brennstoffzelle in Abhängigkeit von den Membraneigenschaften und der Drehzahl der Pumpe einstellenden stationären Betriebstemperatur, so daß im Anodenkreislauf selbst kein zusätzlicher Kühler mehr notwendig ist.



Daimler-Benz-Aktiengesellschaft
Stuttgart

EP/VP - MH
13.02.1998

Brennstoffzellensystem

Die Erfindung betrifft ein Brennstoffzellensystem mit einer Brennstoffzelle, die einen Anodenraum und einen Kathodenraum aufweist, die durch eine protonenleitende Membran voneinander getrennt sind.

Zur Zeit ist zur Verstromung von flüssigen Energieträgern in einem Brennstoffzellensystem mit Protonenaustauschermembran (PEM-Brennstoffzelle) weltweit schwerpunktmäßig die Reformierung von Methanol in einem Gaserzeugungssystem vorgesehen. Dabei wird ein Wasser/Methanol-Gemisch verdampft und in einem Reformer zu Wasserstoff, Kohlendioxid und Kohlenmonoxid umgesetzt. Verdampfung und Reformierung sind hinsichtlich des energetischen Umsatzes sehr aufwendig. Dies hat Wirkungsgradverluste für das Gesamtsystem zur Folge. Darüber hinaus sind Gasaufbereitungsschritte zur Reinigung des Reformierungsgases notwendig. Das gereinigte Gas wird an dem PEM-Brennstoffzellensystem zugeführt. Des weiteren muß ein Kühler zur Kühlung des in dem Anodenkreislauf umlaufenden Kühlmittel/Brennstoff-Gemisches vorgesehen sein.

Ein weiteres Problem stellt der Wassereinsatz für die Reformierung dar. Das auf der Kathodenseite anfallende Produktwasser reicht zur Deckung des Wasserhaushaltes nicht aus. Hierdurch wird ein separater Wassertank notwendig.

Aus der US-PS 5 599 638 ist ein Brennstoffzellensystem bekannt, das einen aus mehreren miteinander verschalteten Brennstoffzellen bestehenden sogenannten Stack aufweist. Der Anodenraum des Stacks bildet Bestandteil eines Anodenkreislaufes, umfassend

einen Wärmetauscher zum Kühlen des vom Anodenausgang abgeleiteten, Kohlendioxid enthaltenden Kühlmittel/Brennstoff-Gemisches, einen Zirkulationstank, in welchem das gekühlte Gemisch einem neu zugeleiteten Kühlmittel/Brennstoff-Gemisch zugesetzt wird, einem in den Zirkulationstank integrierten Gasabscheider zum Abtrennen von Kohlendioxid, und eine Pumpe zum Zuleiten des Kühlmittel/Brennstoff-Gemisches aus dem Zirkulationstank in den Anodenraum über eine entsprechende Zuleitung. Das Sauerstoff und Wasserdampf umfassende Kathodenabgas des bekannten Brennstoffzellensystems wird durch einen Wasserabscheider geleitet, wobei das abgeschiedene Wasser dem Anodenkreislauf zuzuführenden Kühlmittel/Brennstoff-Gemisch zugeleitet und ein Teil des verbleibenden Sauerstoffes in die Oxidationsmittelzufuhr für den Kathodenraum geleitet wird.

Ausgehend hiervon liegt der Erfindung die Aufgabe zugrunde, ein im Aufbau vereinfachtes und kompaktes Brennstoffzellensystem mit protonenleitender Membran mit verbessertem Gesamtwirkungsgrad bereitzustellen.

Zur Lösung dieser Aufgabe wird erfindungsgemäß ein Brennstoffzellensystem mit den Merkmalen des Anspruchs 1 vorgeschlagen. Durch den erfindungsgemäßen Betrieb der Brennstoffzelle mit Wasserdurchbruch von dem Anodenraum in den Kathodenraum erfolgt in der Brennstoffzelle bei Aufnahme des Wassers durch die heiße Luft des Kathodenraums eine Verdampfungskühlung, die erfindungsgemäß zur Kühlung des Anodenkreislaufes genutzt wird. Durch diese Maßnahme kann der Kühler, der sonst im Anodenkreislauf vorgesehen sein muß, eingespart werden.

Weitere vorteilhafte Ausgestaltungen der Erfindung sind in den Unteransprüchen beschrieben.

Vorteilhafterweise wird die Brennstoffzelle in einem Gleichgewicht der Wärmebilanz betrieben, d.h. die Brennstoffzelle wird stationär bei einer Temperatur betrieben, die zum einen von den Eigenschaften der protonenleitenden Membran abhängt und zum an-

deren durch die Drehzahl der Flüssigkeitspumpe einstellbar ist. Je nach Lastpunkt beträgt die Temperatur des stationären Betriebs zwischen 90 und 110°C. Die Einstellung einer stationären Betriebstemperatur ist von entscheidender Bedeutung zur Wirkungsgradsteigerung der Brennstoffzelle bzw. des aus mehreren Brennstoffzellen gebildeten Stacks, da nunmehr ein isothermer Betrieb des Stacks möglich ist, d.h. Temperaturdifferenzen über die Stacklänge, wie sie bei bekannten Systemen in einer Größenordnung von ca. 10°C üblich sind, treten nicht mehr bzw. nur unwesentlich auf.

Die erfindungsgemäße Verdampfungskühlung in der Brennstoffzelle hat darüber hinaus den Vorteil, daß der Massenstrom der trockenen Luft auf das 1,5 bis 2-fache angehoben wird, womit eine Steigerung der Expanderleistung um den gleichen Faktor verbunden ist. Damit ist auch eine Energieeinsparung für die Luftversorgung im Vollastbetrieb verbunden.

Vorteilhafterweise ist ein Luftkühler hinter dem Expander vorgesehen, der in thermischer Kopplung mit dem Fahrzeugkühler steht und der zum Auskondensieren von Wasser zum Erreichen einer positiven Wasserbilanz im System dient.

Die Erfindung wird anhand eines Ausführungsbeispiels in der Zeichnung schematisch dargestellt und im folgenden unter Bezugnahme auf die Zeichnung näher erläutert.

Die einzige Figur zeigt in schematischer Darstellung den Prinzipaufbau eines erfindungsgemäßen Brennstoffzellensystems.

Das in der Figur dargestellte Brennstoffzellensystem umfaßt eine Brennstoffzelle 10, die aus einem Anodenraum 12 und einem Kathodenraum 14 besteht, die durch eine protonenleitende Membran 16 voneinander getrennt sind. Über eine Anodenzuleitung 18 wird dem Anodenraum 12 ein flüssiges Kühlmittel/Brennstoff-Gemisch zugeführt. Als Brennstoff kann hierbei jede elektrochemisch oxidierbare Substanz mit der allgemeinen Strukturformel

$H-[CH_2O]_n-Y$ mit $1 \leq n \leq 5$ und $Y=H$ oder $Y=CH_3$ verwendet werden. Das Brennstoffzellensystem des dargestellten Ausführungsbeispiels wird mit flüssigem Methanol als Brennstoff und Wasser als Kühlmittel betrieben. Obwohl im folgenden nur noch die Verwendung eines Wasser/Methanol-Gemisches beschrieben wird, soll der Schutzbereich dieser Anmeldung jedoch nicht auf dieses Ausführungsbeispiel beschränkt sein. Als Kühlmittel kommen insbesondere auch Flüssigkeiten oder ionische beziehungsweise nicht-ionische Zusätze zum Wasser mit guten Frostschutzeigenschaften in Frage. Bei den möglichen Brennstoffen handelt es sich beispielsweise um verzweigte Varianten obiger allgemeiner Formel, wie zum Beispiel Di- oder Trimethoxymethan.

In den Kathodenraum 14 wird über eine Kathodenzuleitung 20 ein sauerstoffhaltiges Gas geleitet. Gemäß dem dargestellten Ausführungsbeispiel wird hierzu Umgebungsluft verwendet. In der Brennstoffzelle 10 wird der Brennstoff an der Anode oxidiert, der Luftsauerstoff an der Kathode reduziert. Hierzu wird die protonenleitende Membran 16 auf den entsprechenden Oberflächen mit geeigneten Katalysatoren beschichtet. Von der Anodenseite können nun Protonen durch die protonenleitende Membran 16 wandern und sich an der Kathodenseite mit den Sauerstoffionen zu Wasser verbinden. Bei dieser elektrochemischen Reaktion entsteht zwischen den beiden Elektroden eine Spannung. Durch Parallel- bzw. Hintereinanderschaltung vieler solcher Zellen zu einem sogenannten Stack können Spannungen und Stromstärken erreicht werden, die zum Antrieb eines Fahrzeugs ausreichen.

Als Produkt entsteht am Anodenausgang ein mit Wasser und Methanol angereichertes Kohlendioxidgas. Dieses Flüssigkeits-/Gasgemisch wird über eine Anodenableitung 22 aus dem Anodenraum 12 abgeführt. Die Restsauerstoff und Wasserdampf enthaltende Kathodenabluft wird über eine Kathodenabgasleitung 24 abgeführt. Um einen guten Wirkungsgrad zu erhalten, wird die Umgebungsluft im Kathodenraum 14 mit Überdruck bereitgestellt. Hierzu ist in der Kathodenzuleitung 20 ein mit Hilfe eines Elektromotors 26 angetriebener Kompressor 28 mit nachgeordnetem

Luftladekühler 29 angeordnet, der den gewünschten Luftmassenstrom ansaugt und auf das erforderliche Druckniveau verdichtet. Beim Betrieb mit Umgebungsluft wird außerdem vorzugsweise im Eintrittsbereich der Kathodenzuleitung 20 stromauf des Kompressors 28 ein Luftfilter 30 vorgesehen. Ein Teil der für die Komprimierung der Umgebungsluft benötigten Energie kann mit Hilfe eines in der Kathodenabgasleitung 24 angeordneten Expanders 32 zurückgewonnen werden. Vorzugsweise sind der Kompressor 28, der Expander 32 und der Elektromotor 26 auf einer gemeinsamen Welle angeordnet. Die Regelung der Brennstoffzellenleistung erfolgt durch Steuerung oder Regelung der Kompressordrehzahl und damit des zur Verfügung stehenden Luftmassenstromes.

Auf der Anodenseite wird das Wasser/Methanol-Gemisch mit Hilfe einer Pumpe 34 bei einem vorgegebenen Druck zirkuliert, um an der Anode ständig ein Überangebot an Brennstoff zu gewährleisten. Das Verhältnis von Wasser zu Methanol in der Anodenzuleitung 18 wird mit Hilfe eines Sensors 36 eingestellt, der die Methanolkonzentration in der Anodenzuleitung 18 mißt. In Abhängigkeit von diesem Sensorsignal erfolgt dann eine Konzentrationsregelung für das Wasser/Methanol-Gemisch, wobei das flüssige Methanol aus einem Methanoltank 38 über eine Methanolzuführungsleitung 40 zugeführt und mit Hilfe einer nicht näher gezeigten Einspritzdüse 44 in die Anodenzuleitung 18 eingespritzt wird. Der Einspritzdruck wird durch eine in der Methanolzuführungsleitung 40 angeordnete Einspritzpumpe 42 erzeugt. Dem Anodenraum 12 wird somit ständig ein Wasser/Methanol-Gemisch mit konstanter Methanolkonzentration zugeführt.

Aus dem durch die Anodenableitung 22 abgeführten Flüssigkeits-/Gasgemisch muß nun das mit Methanol- und Wasserdampf angereicherte Kohlendioxid abgetrennt werden. Dazu wird das Flüssigkeits-/Gasgemisch über die Anodenableitung 22 einem Gasabscheider 52 zugeführt, in welchem das Kohlendioxid abgetrennt wird. Das in dem Gasabscheider 52 verbleibende Wasser/Methanol-Gemisch wird über eine Leitung 54 in die Anodenzuleitung 18 zurückgeführt.

Das in dem Gasabscheider 52 abgetrennte feuchte Kohlendioxidgas wird in einem Kühler 56 auf eine möglichst niedrige Temperatur abgekühlt und in einem nachgeordneten Wasserabscheider 58 wird weiteres Methanol und Wasser auskondensiert. Das verbleibende trockene Kohlendioxid mit einem geringen Gehalt an Restmethanol wird über eine Leitung 60 der Kathodenabgasleitung 24 zugeführt, wo es mit der sauerstoffreichen Kathodenabluft vermischt wird. Um möglichst viel Wasser aus der Kathodenabluft abzutrennen, sind hinter dem Ausgang des Kathodenraums 14 ein erster Wasserabscheider 59 und stromab des Expanders 32 ein weiterer Wasserabscheider 61 vorgesehen. Der Expander 32 dient dabei als kompakte Kondensationsturbine, an deren Ausgang wiederum ein Teil des Wasserdampfes auskondensiert. Das in den Wasserabscheidern 59, 61 gesammelte Wasser wird anschließend über eine Rückspeiseleitung 64 mit integrierter Rückspeisepumpe 62 in einen Sammel- und Reinigungsbehälter 50 eines Nebenzweiges 48, 66 des Anodenkreislaufes zurückgeleitet. Bei dem Sammel- und Reinigungsbehälter 50 handelt es sich insbesondere um einen Ionentauscher.

In dem Anodenkreislauf ist stromab des Anodenausgangs in der Anodenableitung 22 eine Abzweigungsleitung 48 vorgesehen, die zu dem Sammel- und Reinigungsbehälter 50 führt. Der Ausgang des Sammel- und Reinigungsbehälters 50 ist über eine Leitung 66 mit integriertem Ventil 68 stromauf des Gasabscheiders 52 wieder mit der Anodenableitung 22 verbunden. Der Sammel- und Reinigungsbehälter 50 dient zum Sammeln und Reinigen des von dem Anodenraum 12 kommenden Wasser/Methanol-Gemisches und des in dem Wasserabscheider 58 abgeschiedenen Wassers sowie des über die Rückspeiseleitung 64 in den Anodenkreislauf zurückgeleiteten kathodenseitig angefallenen Produktwassers. Das Ventil 68 dient zum einen zur Verhinderung eines Rückflusses aus der Anodenableitung 22 in die Leitung 66, zum anderen zur Erstellung des Anteils des Gemisches aus der Anodenableitung 22, der durch den Sammel- und Reinigungsbehälter geleitet werden soll.

Erfindungsgemäß wird die Brennstoffzelle 10 mit Wasserdurchbruch von dem Anodenraum 12 in den Kathodenraum 14 betrieben. Das auf diese Weise in den Kathodenraum 14 gelangende flüssige Wasser wird von der über die Kathodenzuleitung 20 in den Kathodenraum 14 eintretenden trockenen und heißen Luft teilweise als Dampf bis zur Sättigungsgrenze aufgenommen. Dadurch kommt es in der Brennstoffzelle 10 zu einer Verdampfungserkühlung, die erfindungsgemäß zur Kühlung des in dem Anodenkreislauf zirkulierenden Kühlmittel/Brennstoff-Gemisches genutzt wird. Auf diese Weise kann der sonst üblicherweise in der Anodenableitung 22 vorgesehene Kühler eingespart werden.

In der Brennstoffzelle 10 stellt sich aufgrund des Betriebs mit Wasserdurchbruch und dem Weglassen des sonst in dem Anodenkreislauf vorgesehenen Kühlers ein stationärer Betrieb bei einer Temperatur ein, die zum einen von den Eigenschaften der protonenleitenden Membran 16 abhängt und zum anderen durch die Drehzahl der Pumpe 34 eingestellt werden kann. Vorteilhafterweise beträgt die stationäre Betriebstemperatur zwischen 90 und 110°C, insbesondere 105°C. Dadurch kann die Brennstoffzelle bzw. ein aus mehreren Brennstoffzellen gebildeter Stack nahezu isotherm betrieben werden.

Die Verdampfungskühlung hat, wie vorstehend bereits erwähnt, darüber hinaus den Vorteil, den Massenstrom der trockenen Luft auf das 1,5 bis 2-fache anzuheben. Damit wird die Leistung des Expanders 32 um den gleichen Faktor gesteigert, womit eine Energieeinsparung für die Luftversorgung verbunden ist. Diese Einsparung beträgt ca. 8 kW im Vollastbetrieb. Ein stromab des Expanders 32 angeordneter Luftkühler 46 steht in thermischer Kopplung mit dem nicht näher dargestellten Fahrzeugkühler und hat die Aufgabe, das zum Erreichen einer positiven Wasserbilanz in dem beschriebenen System fehlende Wasser aus dem Abluftstrom auszukondensieren.

Daimler-Benz-Aktiengesellschaft
Stuttgart

EP/VP - MH
13.02.1998

Patentansprüche

1. Brennstoffzellensystem mit mindestens einer Brennstoffzelle (10), die einen Anodenraum (12) und einen Kathodenraum (14) aufweist, die durch eine protonenleitende Membran (16) voneinander getrennt sind, mit einer Kathodenzuleitung (20) zur Zufuhr von sauerstoffhaltigem Gas zum Kathodenraum (14), einer Anodenzuleitung (18) zur Zufuhr eines flüssigen Kühlmittel/Brennstoff-Gemisches zum Anodenraum (12), wobei der Anodenraum (12) in einem einen Gasabscheider und eine Pumpe (34) umfassenden Anodenkreislauf angeordnet ist, dadurch gekennzeichnet, daß eine Kühlung des im Anodenkreislauf zirkulierenden Kühlmittel/Brennstoff-Gemisches durch die Brennstoffzelle (10) erfolgt, die auf einen Betrieb mit Wasserdurchbruch von dem Anodenraum (12) in den Kathodenraum (14) ausgelegt ist.
2. Brennstoffzellensystem nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der Anodenkreislauf einen Sammel- und Reinigungsbehälter (50) umfaßt.
3. Brennstoffzellensystem nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß der Sammel- und Reinigungsbehälter (50) in einem Nebenzweig (48, 66) der Anodenableitung vor dem Gasabscheider (52) angeordnet ist.
4. Brennstoffzellensystem nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß der Kathodenraum (14) in einem einen Kompressor/Expander-Einheit (28, 32) umfassenden Kathodenkreislauf angeordnet ist.

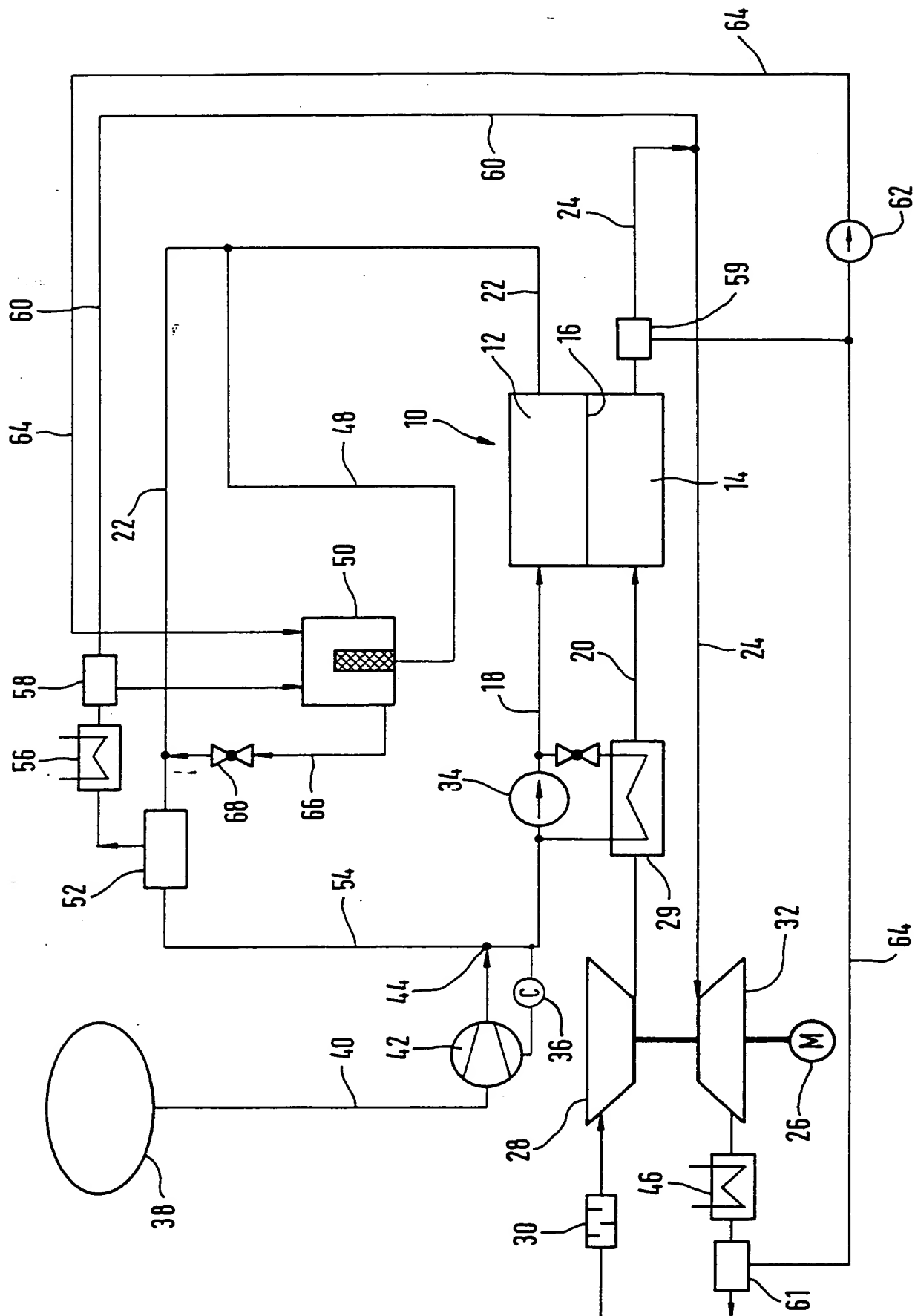
5. Brennstoffzellensystem nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß in dem Kathodenkreislauf hinter dem Kompressor (28) ein Luftladekühler (29) und hinter dem Expander (32) ein Kühler (46) und mindestens ein Wasserabscheider (61) zur Wasserrückgewinnung vorgesehen ist.

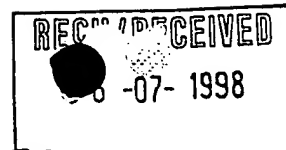
6. Brennstoffzellensystem nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß eine Rückführung von zurückgewonnenem Wasser in den Anodenkreislauf über eine Rückspeiseleitung (64) vorgesehen ist.

7. Brennstoffzellensystem nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß die Rückführung von zurückgewonnenem Wasser in den Sammel- und Reinigungsbehälter (50) erfolgt.

25

1/1





27906

Daimler-Benz-Aktiengesellschaft
Stuttgart

Fuel cell system

The invention relates to a fuel cell system with an anode chamber and a cathode chamber, separated by a proton conducting membrane.

At present, in power generation from liquid energy sources in fuel cell systems with proton exchange membranes (PEM fuel cell), the world-wide focus is on the reforming of methanol in a gas generator system. Hereby a water/methanol mixture is vaporized and in a reformer converted to oxygen, carbon dioxide, and carbon monoxide. Vaporization and reforming are very costly with respect to the energy input. This results in a loss of efficiency for the combined system. In addition, to purify the reformed gas, further processing steps are necessary. The purified gas is then supplied to the PEM fuel cell system. A cooler for cooling the coolant/fuel mixture, circulating in the anode circuit, has to be provided.

Water consumption presents a further problem in the reforming. The product water originating on the cathode side is not sufficient to cover the water budget. This necessitates a separate water tank.

US-PS 5 599 638 presents a fuel cell system, which shows a so-called stack, comprised of several fuel cells, connected to each other. The anode chamber of the stack is part of the anode circuit,

which comprises a heat exchanger for the cooling of the carbon dioxide containing coolant/fuel mixture, which was drained from the anode outlet port, a circulation tank in which the cooled mixture is added to newly taken in coolant/fuel mixture, a gas separator, integrated into the circulation tank, for separating carbon dioxide, and a pump for feeding coolant/fuel mixture from the circulation tank to the anode chamber along a corresponding feed line. The cathode exhaust gas of the fuel cell system, comprising oxygen and water vapor, is carried through a water separator, whereby the separated water is added to the coolant/fuel mixture, which is to be fed to the anode circuit, and part of the remaining oxygen is led into the oxidizing agent feed for the cathode chamber.

Thus the invention has the objective to supply a compact and simple design for a fuel cell system with proton conducting membrane with an improved total efficiency.

To meet this objective this invention proposes a fuel cell system with the features listed in claim 1. According to this invention, during operation of the fuel cell with water breakthrough¹ from the anode chamber into the cathode chamber, an evaporative cooling occurs in the fuel cell when hot air of the cathode chamber absorbs water. According to this invention, this is used for cooling the anode circuit. Due to this feature, a cooler, which otherwise would have to be included in the anode circuit, is no longer necessary.

Further advantageous designs of the invention are described in secondary claims.

The fuel cell is operated in advantageous manner in heat balance equilibrium, e.g. the fuel cell is operated steady-state at a temperature dependent on the properties of the proton conducting membrane,

¹ Unable to find definite translation. Therefore: water- *breach, connection, opening* (The Translator)

and adjustable through the rotational speed of the fluid pump. Depending on the load, the temperature of the steady-state operation is between 90 and 100 °C. Reaching a steady-state operating temperature is of decisive importance for improvements in the efficiency of the fuel cell, or a stack built from several fuel cells, since now an isothermal operation of the stack is possible, i.e. temperature differences across the length of the stack, which are usually on the order of 10°C in conventional systems, no longer occur or no longer occur at a significant level.

In this invention, the evaporative cooling in the fuel cell has the further advantage of increasing the mass flow of dry air to 1.5 to 2 times the normal amount, which leads to an increase in the expander performance by the same factor. This also yields energy savings in the air supply when operating at full load.

Advantageously, after the expander, an air cooler is provided, which is heat coupled to the vehicle's radiator and serves for condensing water, to achieve a positive water balance in the system.

The invention is presented schematically in the figure using a design example, and is described in the following with references to the figure.

The single figure shows in schematic presentation the principle design of the fuel cell in this invention.

The fuel cell system shown in the figure comprises a fuel cell 10, consisting of an anode chamber 12 and a cathode chamber 14, separated by a proton conducting membrane 16. A liquid coolant/fuel mixture is supplied to the anode chamber 12 by an anode feed line 18. All substances which can be oxidized chemically

and have the general structural formula $H-[CH_2O]_n-Y$, with $1 \leq n \leq 5$ and $Y=H$ or $Y=CH_3$, can be used as fuel. The fuel cell system in the illustrated design example is operated with liquid methanol as fuel and water as coolant. Even though only the use of water/methanol mixture will be described in the following, the extent of protection of this application should not be limited to this design example. Especially fluids or ionic or non-ionic water additives with favorable antifreeze properties can be considered as coolants. Possible fuels are e.g. branched variants of the above general formula, such as, for example, di- or trimethoxymethane.

Gas, containing oxygen, is fed into the cathode chamber 14 by a cathode feed line 20. According to the design example, ambient air is used hereby. In the fuel cell 10, the fuel is oxidized at the anode, the oxygen, contained in the air, is reduced at the cathode. Hereby, the proton conducting membrane 16 is coated with suitable catalysts on the corresponding surfaces. Protons can now migrate from the anode side through the proton conducting membrane and combine on the cathode side with oxygen ions to form water. In this electrochemical reaction a voltage is generated between the two electrodes. By connecting many such cells in series or parallel to form a so-called stack, voltages and amperages can be achieved which are sufficient for the propulsion of a vehicle.

At the anode exit, carbon dioxide gas enriched with water and methanol is formed as a product. This fluid/gas mixture is removed from the anode chamber 12 through an anode discharge line 22. The cathode exhaust air, containing residual oxygen and water vapor, is vented through a cathode exhaust gas line 24. To achieve a high efficiency, the ambient air is supplied under excess pressure in the cathode chamber 14. For this purpose, the cathode feed line contains a compressor 28, powered by an electric motor 26,

followed by an *air-loading cooler*² 29, which takes in the desired air mass flow and compresses it to the necessary pressure level. When operating with ambient air, preferably an air filter 30 is included in the inlet area of the cathode feed line 20, upstream of the compressor 28. A portion of the energy needed for the compression of the ambient air can be reclaimed with the help of an expander 32, located in the cathode exhaust line 24. Preferably, the compressor 28, the expander 32, and the electric motor 26 are installed on a common shaft. The fuel cell power is adjusted by controlling the compressor's rotational speed, and thus the available air mass flow.

On the anode side, the water/methanol mixture is circulated at preset pressure by a pump 34, to guarantee a constant over-supply of fuel at the anode. The ratio of water to methanol in the anode feed line is adjusted using a sensor 36, which measures the concentration of methanol in the anode feed line 18. Dependent on this sensor signal, a concentration adjustment for the water/methanol mixture is made, whereby the liquid methanol is taken in from a methanol tank 38 by a methanol feed line 40 and is injected into the anode feed line 18 using an injection nozzle 44, not shown here. An injection pump 42, located in the methanol feed line 40, generates the injection pressure. Thus the anode chamber 12 is constantly supplied with a water/methanol mixture with a constant methanol concentration.

The carbon dioxide, enriched with methanol- and water vapor, now has to be separated from the fluid/gas mixture, which has been removed through the anode discharge line 22. For this purpose, the fluid/gas mixture is fed through the anode discharge line 22 to a gas separator 52, in which the carbon dioxide is separated. The water/methanol mixture remaining in the gas separator 52 is carried back to the anode feed line 18 by a line 54.

² Unable to find a definite translation for this device. *Air-loading cooler* is the literal translation. The device apparently compresses air by cooling it. (The Translator)

The moist carbon dioxide gas, separated in the gas separator 52, is cooled to a temperature as low as possible in a cooler 56. In a following water separator 58 more methanol and water are condensed out. The remaining dry carbon dioxide, with a low content of residual methanol, is fed by a line 60 to the cathode exhaust line 24, where it is mixed with the oxygen rich cathode exhaust air. To separate as much water as possible from the cathode exhaust air, a first water separator 59 is provided after the outlet port of the cathode chamber 14 and a second water separator 61 down stream from the expander 32. The expander 32 serves in the role of a compact condensing turbine, at the exit of which another portion of the water vapor condenses out. The water collected in the water separators 59, 61, is subsequently fed back into a collection- and purification container 50 of a side branch 48, 66 of the anode circuit by a return feed line 64 with integrated return feed pump 62. The collection- and purification container is in particular an ion exchanger.

Within the anode circuit, in the anode discharge line 22, down-stream of the anode outlet port, a branching line 48 is provided, which leads to the collection and purification container. The outlet port of the collection and purification container 50 is connected to the anode discharge line 22 by a line 66 with an integrated valve 68, up-stream of the gas separator 52. The collection- and purification container 50 serves for the collection and purification of the water/methanol mixture arriving from the anode chamber 12, and of the water segregated in the water separator 58, and of the product water, originating at the cathode side, fed back to the anode circuit by the return feed line 64. The valve 68 serves a dual purpose, in preventing back-flow from the anode discharge line 22 into line 66, and in regulating the portion of the mixture from the anode discharge line 22, which is to be conducted through the collection- and purification container.

According to this invention, the fuel cell 10 is operated with water breakthrough³ from the anode chamber 12 into the cathode chamber 14. The liquid water, reaching the cathode chamber 14 in this manner, is partially absorbed, up to the saturation limit, by dry and hot air entering the cathode chamber 14 through the cathode feed line 20. This leads to evaporative cooling in the fuel cell 10, which in this invention is used for cooling the coolant/fuel mixture circulating in the anode circuit. In this manner, a conventional cooler in the anode discharge line 22 is no longer necessary.

Due to the operation with a water breakthrough and the lack of a conventional cooler in the anode circuit, the fuel cell 10 reaches steady-state operation at a temperature, which depends on the properties of the proton conducting membrane 16 and can be regulated by the rotational speed of pump 34. An advantageous steady-state operating temperature is between 90°C and 110°C, in particular 105°C. Thus the fuel cell or a stack of several fuel cells can be operated nearly isothermally.

The evaporative cooling, as mentioned before, has the advantage of increasing the mass flow of dry air to 1.5 to 2 times the normal level. This increases the power of the expander 32 by the same factor, which results in energy savings for the air supply. These savings are approximately 8 kW at full load operation. An air cooler 46, located down-stream of the expander 32, is heat coupled with the vehicle radiator, not shown here, and has the task of condensing enough water out of the exhaust air flow to reach a positive water balance in the described system.

³ See footnote 1. (The Translator)

Patent claims

1. Fuel cell system with at least one fuel cell 10, comprising an anode chamber (12) and a cathode chamber (14), separated by a proton conducting membrane (16), with a cathode feed line (20) for the supply of gas containing oxygen to the cathode chamber (14), an anode feed line (18), for supply of liquid coolant/fuel mixture to the anode chamber (12), whereby the anode chamber is contained in an anode circuit, comprising a gas separator and a pump (34), characterized by the coolant/fuel mixture, circulating in the anode circuit, being cooled by the fuel cell (10), which is designed for operation with water breakthrough⁴ from the anode chamber (12) to the cathode chamber (14).
2. Fuel cell system, according to claim 1, characterized by the anode circuit comprising a collection- and purification container (50).
3. Fuel cell system, according to claim 2, characterized by the collection and purification container being located in a side branch (48, 66) of the anode discharge line, before the gas separator (52).
4. Fuel cell system, according to one of the claims 1 to 3, characterized by the cathode chamber (14) being located in a cathode circuit, comprising a compressor/expander unit (28, 32).

⁴ See footnote 1. (The translator)

5. Fuel cell system, according to claim 4, characterized by an *air-loading cooler*⁵ being provided after the compressor (28) in the cathode circuit, and one cooler and at least one water separator (61) for water recovery being provided after the expander.
6. Fuel cell system, according to claim 5, characterized by the re-circulation of recovered water into the anode circuit by a return feed line (64).
7. Fuel cell system, according to claim 6, characterized by the re-circulation of recovered water into the collection- and purification container (50).

⁵ See footnote 2. (The Translator)

Summary

Fuel cell system with at least one fuel cell, comprising an anode chamber and a cathode chamber, separated by a proton conducting membrane, with a cathode feed line for the supply of gas containing oxygen to the cathode chamber, an anode feed line for the supply of liquid coolant/fuel mixture to the anode chamber, whereby the anode chamber is contained in an anode circuit comprising a gas separator and a pump. The coolant/fuel mixture, circulating in the anode circuit, is cooled by the fuel cell, which is operating with water breakthrough⁶ from the anode chamber into the cathode chamber. Because of the evaporative cooling in the fuel cell, achieved in this manner, the coolant/fuel mixture is cooled at a steady-state operating temperature being reached dependent on the membrane properties and the rotational speed of the pump. Thus, no separate cooler is necessary in the anode circuit.

⁶ See footnote 1. (The Translator)

| | | | | | |
|-------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------|-------------------|
| In der Anschrift Straße, Haus-Nr. und ggf. Postfach angeben | (1) Sendungen des Deutschen Patentamtes sind zu richten an: | | Antrag auf Erteilung eines Patents | | 1 |
| | Daimler-Benz Aktiengesellschaft FTP/S - C 106 70546 Stuttgart FTP/S koh-öa | | <div style="border: 1px solid black; padding: 5px; display: inline-block;"> FTP/S 02. März 1998 Eing.: _____ z. Kenntnis _____ Ablage _____ Frist _____ </div> <div style="border: 1px solid black; padding: 5px; display: inline-block;"> Aktenzeichen / wird vom Deutschen Patentamt vergeben) 193 07 876.5 </div> | | |
| nur auszu- füllen, wenn abweichend von Feld (1) | (2) Zeichen des Anmelders/Vertreters (max. 20 Stellen) Daim 27906/4 | | Telefon des Anmelders/Vertreters 0711/1758565 | | Datum 24.02.98 |
| | (3) Der Empfänger in Feld (1) ist der <input type="checkbox"/> Anmelder <input checked="" type="checkbox"/> Zustellungsbevollmächtigte <input type="checkbox"/> Vertreter | | ggf. Nr. der Allgemeinen Vollmacht | | |
| soweit bekannt | (4) Anmelder | | Vertreter | | |
| | Daimler-Benz Aktiengesellschaft Epplerstraße 225 70 546 Stuttgart | | | | |
| | (5) Anmeldercode-Nr. 1 000 306 | Vertretercode-Nr. | Zustelladrefcode-Nr. | ERF. | |
| | (6) Bezeichnung der Erfindung (bei Überlänge auf gesondertem Blatt - 2fach) | | | | |
| s. Erläute- rung u. Kosten hinweise auf der Rückseite | (7) Sonstige Anträge | | Aktenzeichen der Hauptanmeldung (des Hauptpatents) | | |
| | <input type="checkbox"/> Die Anmeldung ist Zusatz zur Patentanmeldung (zum Patent) → <input checked="" type="checkbox"/> Prüfungsantrag - Prüfung der Anmeldung mit Ermittlung der öffentlichen Druckschriften (§ 44 Patentgesetz) <input type="checkbox"/> Recherchenantrag - Ermittlung der öffentlichen Druckschriften ohne Prüfung (§ 43 Patentgesetz) <input checked="" type="checkbox"/> Lieferung von Ablichtungen der ermittelten Druckschriften im <input checked="" type="checkbox"/> Prüfungsverfahren <input type="checkbox"/> Recherchenverfahren <input type="checkbox"/> Aussetzung des Erteilungsbeschlusses auf _____ Monate (\$ 49 Abs. 2 Patentgesetz) (Max. 15 Mon. ab Anmelde- oder Prioritätstag) | | | | |
| | (8) Erklärungen | | Aktenzeichen der Stammanmeldung | | |
| | <input type="checkbox"/> Teilung/Ausscheidung aus der Patentanmeldung → <input type="checkbox"/> an Lizenzvergabe interessiert (unverbindlich) <input type="checkbox"/> mit vorzeitiger Offenlegung und damit freier Akteneinsicht einverstanden (§ 31 Abs. 2 Nr. 1 Patentgesetz) | | | | |
| Erläuterung und Kosten- hinweise s. Rückseite | (9) <input type="checkbox"/> Inländische Priorität (Datum, Aktenzeichen der Voranmeldung) <input type="checkbox"/> Ausländische Priorität (Datum, Land, Aktenz. der Voranmeldung) | | } bei Überlänge auf gesondertem Blatt - 2fach) | | |
| | (Bitte vollständige Abschrift(en) der Voranmeldung(en) beifügen) | | | | |
| | (10) Gebühreuzahlung in Höhe von 520.- DM | | Abbuchung von meinem/vunserem Abbuchungskonto b. d. Dresdner Bank AG, München | | |
| | <input type="checkbox"/> Scheck ist beifügt | | <input type="checkbox"/> Überweisung (nach Erhalt der Empfangsbescheinigung) | | |
| | | <input checked="" type="checkbox"/> Gebührenmarken sind beifügt (bitte nicht auf d. Rückseite kleben, ggf. auf gesond. Blatt) | | <input type="checkbox"/> Nr. _____ | |

Diese Patentanmeldung ist an dem durch Perforierung angegebenen Tag beim Deutschen Patentamt eingegangen. Sie hat das mit "P" gekennzeichnete Aktenzeichen erhalten.

Dieses Aktenzeichen ist gemäß den Anmeldebestimmungen bei allen Eingaben anzugeben. Bei Zahlungen ist der Verwendungszweck hinzuzufügen.

Nur von der Annahmestelle auszufüllen:

☐ Für die obengenannte Anmeldung sind Gebührenmarken im Wert von 520.- DM entrichtet.

Bitte beachten Sie die Hinweise
auf der Rückseite
der zurückgehaltenen Antragsdurchschrift

EB

P 2007
3.97

Erläuterung zu Feld (7)

Der Recherchenantrag ist vom Prüfungsantrag unabhängig.

Wird er vor dem Prüfungsantrag gestellt, so werden nur die bei der zuständigen Prüfungsstelle vorliegenden öffentlichen Druckschriften ermittelt, die für die Beurteilung der Patentfähigkeit des Anmeldungsgegenstandes in Betracht zu ziehen sind.

Wird zuerst der Prüfungsantrag gestellt, so ist ein danach gestellter Recherchenantrag ohne Wirkung. Er gilt als nicht gestellt; die entrichtete Gebühr wird zurückgezahlt. Die gleichzeitige Stellung eines Prüfungs- und Recherchenantrages ist nur erforderlich, wenn zusätzlich zur Prüfung der Patentanmeldung auf Patentfähigkeit auch die Ermittlung des einschlägigen Standes der Technik in Form eines Recherchenberichtes gewünscht wird.

Erläuterungen zu Feld (10)

Schecks, die auf ein ausländisches Kreditinstitut gezogen sind, werden nicht angenommen.

Abbuchung erfolgt nur von eigens für diesen Zweck bei der Dresdner Bank AG München, 80273 München, eingerichteten Abbuchungskonten (nach den Bedingungen gemäß MittPräsDPA Nr 2/90 vom 15. Dezember 1989, Bl. f. PMZ 1990,1)

Kostenhinweise*)

Als Gebühren und Auslagen sind zu entrichten:

| | |
|--------------------------------------------------|------------------------|
| für eine Patentanmeldung..... | 100,- DM Anmeldegebühr |
| für eine Recherche | 200,- DM Antragsgebühr |
| für die Prüfung der Anmeldung | |
| - bei gestelltem Recherchenantrag..... | 250,- DM Antragsgebühr |
| - ohne Recherchenantrag..... | 400,- DM Antragsgebühr |
| für die Erteilung je einer Abschrift | |
| aller ermittelten Druckschriften | |
| - im Recherchenverfahren..... | 30,- DM |
| - im Prüfungsverfahren..... | 20,- DM |
| sofern der Antrag auf Erteilung der Abschriften | |
| in dem jeweiligen Verfahren gestellt worden ist. | |

Außerdem ist für jede Patentanmeldung unaufgefordert bei Beginn des dritten und jedes folgenden Jahres, gerechnet vom Anmeldetag an, eine Jahresgebühr nach folgender Tabelle zu entrichten:

| | | | | | | | | | | |
|---------------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|-------|--------|
| Patentjahr: | 3. | 4. | 5. | 6. | 7. | 8. | 9. | 10. | 11. | 12. |
| Betrag in DM: | 100.- | 100.- | 150.- | 225.- | 300.- | 400.- | 500.- | 600.- | 800.- | 1050.- |
| Patentjahr: | 13. | 14. | 15. | 16. | 17. | 18. | 19. | 20. | | |
| Betrag in DM: | 1300.- | 1550.- | 1800.- | 2100.- | 2400.- | 2700.- | 3000.- | 3300.- | | |

Die Gebühr wird jeweils am letzten Tag des Anmeldemonats fällig (Beispiel: Anmeldetag 15.03.92, Fälligkeit der 3. Jahresgebühr 31.03.94). Wird sie danach nicht innerhalb von 2 Monaten entrichtet, ist der Zuschlag von 10 Prozent der vollen Gebühr zu zahlen. Das Patentamt gibt darüber dem Anmelder eine Nachricht mit einer letzten Zahlungsfrist von 4 Monaten. Für Zusatzanmeldungen brauchen keine Jahresgebühren gezahlt zu werden.

Bei der Zahlung sind der Verwendungszweck (Anmelde-, Recherchenantrags-, Prüfungsantragsgebühr, Jahresgebühr, Auslagen für die Erteilung von Abschriften) und, soweit bekannt, das Aktenzeichen (P.....) anzugeben.

Bankverbindungen des Deutschen Patentamts: Landeszentralbank München 700 010 54 (BLZ 700 000 00)

Eine Liste (R 5042) mit Anschriften von Personen und Einrichtungen, die sich mit der Förderung von Erfindern oder der wirtschaftlichen Verwertung von Erfindungen befassen, ist beim Deutschen Patentamt kostenlos erhältlich. Es handelt sich jedoch nicht um eine Empfehlungsliste und diese Einrichtungen unterstehen nicht der Aufsicht des Deutschen Patentamts.

*) Wichtiger Hinweis

Stand 15. März 1994

Die jeweils gültigen Gebühren können dem Merkblatt A 9510 entnommen werden.

Daim 27 906/4

Titel: "Brennstoffzellensystem"

ANR: 1 000 306

Gebührenmarken DM 520,-



10
DM
1997

10
DM
1997

Daimler-Benz AG - 70544 Stuttgart

EINSCHREIBEN

An das
Deutsche Patentamt

80297 München

Telefon
(0711) 17-
5 8565

Telex
(0711) 17-
5 82 92

Hauspost-
Code
C106

Ihre Zeichen, Ihre Nachricht vom

unser Zeichen, unsere Nachricht vom
FTP/S koh-5a

Unters
Hr. Kocher

Datum
24.02.98

Deutsche Patentanmeldung
„Brennstoffzellensystem“
Unsere Akte: Daim 27 906/4

Erfinderbenennung

Für den Gegenstand unserer obengenannten Patentanmeldung benennen wir als Erfinder
die Herren

Dr.-Ing. Arnold Lamm, Stiergartenweg 1, 89275 Oberelchingen
Dipl.-Ing. Norbert Wiesheu, Georg-Lacher-Str.16, 89312 Guenzburg
Jens Müller, Burgsteige 26, 89134 Blaustein

Wir versichern, daß weitere Personen unseres Wissens an der Erfindung nicht beteiligt sind.

Die Erfindung ist als Dienstleistung aufgrund der gesetzlichen Bestimmungen auf uns
übergegangen.

Daimler-Benz Aktiengesellschaft

AV-Nr: 11/85

Dahmen

Dahmen